

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problems Mailbox.**

AA

DE 31 08 895 A1 – Monsanto Co.

The invention relates to olefin polymers which are modified by substituted maleic acid amides and can be used as metal adhesives.

BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENTAMT

⑫ Offenlegungsschrift
⑪ DE 3108895 A1

⑤ Int. Cl. 3:

C08F8/30

C08F8/46
C08F10/00
C08J5/12
C09J3/14
B32B15/08

⑬ Aktenzeichen: P 31 08 895.3
⑭ Anmeldetag: 9. 3. 81
⑮ Offenlegungstag: 18. 2. 82

① Unionspriorität: ② ③ ④

10.03.80 US 128611

② Anmelder:

Monsanto Co., 63166 St. Louis, Mo., US

③ Vertreter:

Berg, W., Dipl.-Chem. Dr.rer.nat.; Stafp, O., Dipl.-Ing.;
Schwabe, H., Dipl.-Ing.; Sandmair, K., Dipl.-Chem. Dr.jur.
Dr.rer.nat., Pat.-Anw., 8000 München

⑦ Erfinder:

Coran, Aubert Yaucher; Patel, Raman, 44313 Akron, Ohio,
US

⑩ Modifizierte Olefinpolymere und ihre Verwendung als Klebstoffe

Die Erfindung betrifft Olefinpolymere, die mit substituierten
Maleinsäureamiden modifiziert werden, und die als Metall-
klebstoffe brauchbar sind. (31 08 895 -

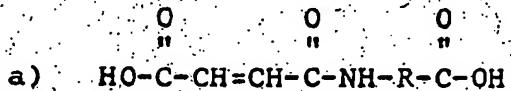
DE 3108895 A1

DR. BERG - DIPLO. ING. STAPP
DIPL.-ING. SCHWABE - DR. DR. SANDMAIR 3108895
PATENTANWÄLTE
Postfach 860245 · 8000 München 86

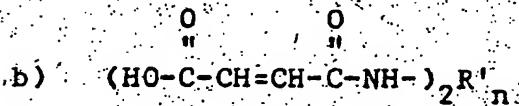
Anwalts-Akte: 31 361

Patentansprüche

1. Modifiziertes Olefinpolymer, dadurch gekennzeichnet, daß es das Reaktionsprodukt aus Monoolefinpolymer und etwa 0,1 bis 20 Gew.% eines substituierten Maleinsäureamids enthält, welches die Formel



worin R ein gerades oder verzweigtes Alkylenradikal mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen bedeutet, oder die Formel



worin n Null oder 1, und R' ein gerades oder verzweigtes Alkylenradikal mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen oder Arylen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeuten, besitzt.

2. Polymer nach Anspruch 1, dadurch gekennzeichnet, daß das Olefinpolymer ein thermoplastisches, praktisch gesättigtes Homopolymer oder Copolymer eines C₂- bis C₈- α -Olefins ist.

3. Polymer nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß es das Reaktionsprodukt von etwa 0,2 bis 10 Gew.% eines substituierten Maleinsäureamids der Formel a) enthält.
4. Polymer nach Anspruch 2, dadurch gekennzeichnet, daß es das Reaktionsprodukt von etwa 0,2 bis 10 Gew.% eines substituierten Maleinsäureamids der Formel b) enthält, worin $n \geq 1$ bedeutet.
5. Polymer nach Anspruch 3, dadurch gekennzeichnet, daß das Olefinpolymer kristallines Polypropylen ist.
6. Polymer nach Anspruch 4, dadurch gekennzeichnet, daß das Olefinpolymer kristallines Polypropylen ist.
7. Polymer nach Anspruch 5, dadurch gekennzeichnet, daß R ein Alkylenradikal mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeutet.
8. Polymer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß R' ein Alkylenradikal mit 2 bis 12 Kohlenstoffatomen bedeutet.

9. Polymer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß R' 1,3-Phenylen bedeutet.
10. Polymer nach Anspruch 6, dadurch gekennzeichnet, daß R' 1,4-Phenylen bedeutet.
11. Polymer nach Anspruch 7, dadurch gekennzeichnet, daß R' Methylen bedeutet.
12. Polymer nach Anspruch 8, dadurch gekennzeichnet, daß R' Hexamethylen bedeutet.
13. Verbessertes Produkt aus einem Metallteil und einem darauf verklebten Polymermaterial, dadurch gekennzeichnet, daß an der Grenzfläche zwischen dem Metall und dem Polymermaterial ein Klebstoff vorhanden ist, der eine die Haftung fördernde Menge des modifizierten Polymers nach Anspruch 1 enthält.
14. Produkt nach Anspruch 13, dadurch gekennzeichnet, daß das Metallteil aus Eisen, Aluminium, Zink, Kupfer oder Legierungen derselben besteht.
15. Produkt nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß das Polymermaterial Olefinpolymer enthält.

16. Produkt nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß das Polymermaterial Kautschuk enthält.
17. Produkt nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß der Kautschuk EPDM Kautschuk ist.
18. Produkt nach Anspruch 15, dadurch gekennzeichnet, daß das Olefinpolymer Polypropylen ist.
19. Produkt nach Anspruch 18, dadurch gekennzeichnet, daß das Metall Aluminium ist.
20. Produkt nach Anspruch 16, dadurch gekennzeichnet, daß der Klebstoff das modifizierte Polymer nach Anspruch 7 ist.
21. Produkt nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß der Klebstoff das modifizierte Polymer nach Anspruch 8 ist.
22. Produkt nach Anspruch 14, dadurch gekennzeichnet, daß R' Phenylen ist.

.....

DR. BERG DIPLO-ING. STAPP
DIPLO-ING. SCHWABE DR. DR. SANDMAIR 3108895
PATENTANWÄLTE
Postfach 860245 · 8000 München 86

Anwalts-Akte: 31 361

5

9. März 1981

MONSANTO COMPANY
ST. LOUIS, MISSOURI / USA

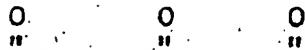
Modifizierte Olefinpolymere und ihre Verwendung als
Klebstoffe

B e s c h r e i b u n g

Die Erfindung betrifft verbesserte Olefinpolymere, insbesondere Olefinpolymere, die mit Maleinsäureamid-Derivaten modifiziert werden. Sie betrifft ferner verklebte Produkte aus Metall und Polymermaterial.

Die Modifizierung von Olefinpolymeren mit ungesättigten Carbonsäuren ergibt Polymerzubereitungen mit überlegener Haftung auf verschiedenen Substraten; vgl. hierzu z.B. US-PSen 3 483 276 und 3 987 122. Die Verbesserung der Haftung von Elastomeren auf Metall durch Härtung des Elastomers mit einem Freien Radikal-Härtungssystem in Gegenwart von N-Maleinsäureamid- oder N-Maleinsäureimidverbindungen ist ebenfalls bekannt; vgl. US-PS 3 502 542. Um jedoch alle Möglichkeiten für Produkte aus Polymermaterial, das auf Metall geklebt ist, ausschöpfen zu können, wird noch bessere Haftung benötigt.

Es wurde nunmehr gefunden, daß ein α -Monoolefinpolymer, das durch Reaktion mit einem substituierten Maleinsäureamid modifiziert wurde, eine Polymerzubereitung mit überlegener Haftung besonders auf Metallsubstraten ergibt. Das erfindungsgemäße modifizierte Monoolefinpolymer enthält das Reaktionsprodukt aus einem Olefinpolymer, vorzugsweise einem thermoplastischen Olefinpolymer, und etwa 0,1 bis 20 Gew.% eines substituierten Maleinsäureamids der Formel



a) $\text{HO}-\text{C}-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}-\text{NH}-\text{R}-\text{C}-\text{OH}$

worin R ein gerades oder verzweigtes Alkylenradikal mit 1 bis 18 Kohlenstoffatomen darstellt, oder der Formel



b) $(\text{HO}-\text{C}-\text{CH}=\text{CH}-\text{C}-\text{NH}-)_2\text{R}'_n$

worin n Null oder 1 bedeutet, und R' ein gerades oder verzweigtes Alkylenradikal mit 2 bis 18 Kohlenstoffatomen, oder Arylen mit 1 bis 12 Kohlenstoffatomen darstellt. Geeignete Arylenradikale sind u.a. Phenylen und mit Niedrigalkyl, Niedrigalkoxy oder Halogen, vorzugsweise Chlor, substituiertes Phenylen. Niedrigalkyl ist ein Alkylenradikal mit 1 bis 6 Kohlenstoffatomen. Alkylenradikale mit bis zu 12 Kohlenstoffatomen werden bevorzugt.

Die erfundungsgemäßen modifizierten Olefinpolymere können leicht durch Schmelzmischen des Olefinpolymers mit substituiertem Maleinsäureamid, vorzugsweise in Gegenwart eines Radikal-Generators, hergestellt werden. Zum Mischen der Bestandteile und zur Durchführung der Reaktion können herkömmliche Kunststoff-Knetvorrichtungen wie eine Mühle, ein Banbury-Mischer oder eine Doppelschneckenpresse verwendet werden. Je nach Temperatur, Art des Olefinpolymers, des substituierten Maleinsäureamids und des Radikal-Generators genügen im allgemeinen Mischzeiten von 1 bis 30 min, um die Reaktion im wesentlichen zur Vollständigkeit zu führen.

Vorzugsweise läßt man die Bestandteile bei einer Temperatur über dem Fließpunkt des Olefinpolymers reagieren. Zur Förderung der Reaktion ist im allgemeinen ein (Freier) Radikal-Generator, wie z.B. ein Peroxid, in Mengen von etwa 0,1 bis 50 Gewichtsanteilen pro 100 Gew. Anteile substituiertes Maleinsäureamid vorhanden. Die Menge des Radikal-Generators wird so klein wie möglich gehalten, um überschüssiges Vernetzen des Olefinpolymers oder, im Fall von verzweigten Olefinpolymeren wie Polypropylen, Übermäßigen Abbau des Polymers zu vermeiden. Im allgemeinen macht der Radikal-Generator 5 oder weniger, vorzugsweise 1 oder weniger Gewichtsanteile pro 100 Gewichtsanteile Olefinpolymer aus. Bevorzugte erfindungsmaße, modifizierte Polymere enthalten die Reaktionsprodukte aus Olefinpolymer und etwa 0,2 bis 10 Gew.% substituiertem Maleinsäureamid.

Geeignete Olefinpolymere sind amorphe oder kristalline, praktisch gesättigte Homopolymere oder Copolymere von C_2 - bis C_8 - α -Monoolefinen. Thermoplastische kristalline Olefinpolymere werden besonders bevorzugt. Eine wichtige Untergruppe brauchbarer Olefinpolymere umfaßt Festprodukte mit hohem Molekulargewicht aus der Hochdruck- oder Niederdruckpolymerisation von Monoolefinen oder deren Gemischen. Beispiele für solche Polymere sind die isotaktischen oder syndiotaktischen Monoolefinpolymere, von denen beispielhafte Vertreter allgemein erhältlich sind. Zufriedenstellende Olefine

sind u.a. Ethylen, Propylen, 1-Buten, 1-Penten, 1-Hexen, 2-Methyl-2-propen, 3-Methyl-1-penten, 4-Methyl-1-penten, 5-Methyl-1-hexen und Gemische daraus. Handelsübliche thermoplastische Polyolefinharze, wie Polyethylen, Polybuten-1 und Polypropylen, sowie Gemische daraus, können in dem erfindungsgemäßen Verfahren vorteilhaft verwendet werden, wobei Polypropylen bevorzugt wird. Ebenfalls für das erfindungsgemäße Verfahren geeignet sind Copolymeren aus zwei oder mehr Olefinen, wobei Copolymeren aus Ethylen und Propylen bevorzugt werden.

Die substituierten Maleinsäureamide, die zur Herstellung der erfindungsgemäßen modifizierten Monoolefinpolymere brauchbar sind, können als Derivate der 4-Oxo-2-butensäure, d.h. 4-(Carboxyalkylamino)-4-oxo-2-butensäure und 4,4'-(Alkandiylidamino- oder Phenylendiamino)-bis-4-oxo-2-butensäure bezeichnet werden. Auch 4,4'-(Hydrazo)-bis-4-oxo-2-butensäure kann zur Herstellung von modifiziertem Polymer verwendet werden. Der Einfachheit halber werden sie hier jedoch als Maleinsäureamidderivate bezeichnet.

Beispiele der substituierten Maleinsäureamide der Formel a), die für das erfindungsgemäße Verfahren geeignet sind, sind:

N-(Carboxymethyl)-maleinsäureamid

N-(2-Carboxyethyl)-maleinsäureamid

N-(2-Carboxypropyl)-maleinsäureamid

- 8 - 10

N-(3-Carboxypropyl)-maleinsäureamid
N-(2-Carboxybutyl)-maleinsäureamid
N-(3-Carboxybutyl)-maleinsäureamid
N-(4-Carboxybutyl)-maleinsäureamid
N-(5-Carboxypentyl)-maleinsäureamid
N-(6-Carboxyhexyl)-maleinsäureamid
N-(7-Carboxyheptyl)-Maleinsäureamid
N-(8-Carboxyoctyl)-maleinsäureamid
N-(4-Carboxy-1,1,3,3-tetramethylbutyl)-maleinsäureamid
N-(10-Carboxydecyl)-maleinsäureamid
N-(12-Carboxydodecyl)-maleinsäureamid
N-(15-Carboxypentadecyl)-maleinsäureamid
N-(18-Carboxyoctadecyl)-maleinsäureamid

Beispiele der substituierten Maleinsäureamide der Formel b),
die für das erfindungsgemäße Verfahren geeignet sind, sind:

N,N'-Dimaleinsäureamid
N,N'-(Dimethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1-Methyl-1,2-ethandiyl)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Trimethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1-Methyl-1,3-propandiyl)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Tetramethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(2,2-Dimethyl-1,3-propandiyl)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Pentamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Hexamethylen)-dimaleinsäureamid

- 10 -
M

N,N'-(Heptamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Octamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Decamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Dodecamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Pentadecamethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(Octadecylmethylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1,2-Phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1,3-Phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1,4-Phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(4-Methyl-1,2-phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(5-Methyl-1,3-phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(5-Methoxy-1,3-phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(2-Chlor-1,4-phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(5-tert.-Butyl-1,3-phenylen)-dimaleinsäureamid
N,N'-(1,2-Naphthylen)-dimaleinsäureamid

Jeder Radikal-Generator, der die Reaktion zwischen Olefinpolymer und substituiertem Maleinsäureamid fördert, ist für das erfindungsgemäße Verfahren geeignet. Dazu gehören Azide sowie anorganische oder organische Peroxide. Beispiele für geeignete Radikal-Generatoren sind Dicumylperoxid, Benzoylperoxid, 2,5-Dimethyl-2,5-bis-(tert.-butylperoxy)-hexan, 1,1-Bis-(tert.-butylperoxy)-3,3,5-trimethylcyclohexan, Tris-[α , α -dimethyl- α -(tert.-butylperoxy)-methyl]-benzol, Di-tert.-butylperoxid, Lauroylperoxid, Cumolhydroperoxid, tert.-Butylhydroperoxid, α , α '-Bis-(tert.-butylperoxy)-hexan, Pinanhydroperoxid,

p-Methanhydroperoxid und Azobisisobutyronitril.

Eine Ausführungsform der Erfindung beinhaltet verstärkte Produkte aus einem Metallteil mit darauf verklebtem Polymermaterial. Erhöhte Haftung zwischen dem Metall und dem Polymermaterial wird erzielt, indem man an der Grenzfläche zwischen Metallteil und Polymermaterial eine die Haftung fördernde Menge des erfindungsgemäßen modifizierten Polymers vorsieht. Das erfindungsgemäße modifizierte Olefinpolymer kann genau wie herkömmliche Klebstoffe aufgebracht werden, z.B. als Warmschmelz-Klebstoff mit direktem Kontakt bei einer Temperatur über dem Erweichungs- oder Fließpunkt des modifizierten Polymers oder des Polymermaterials, welches modifiziertes Polymer enthält. Das modifizierte Polymer kann dann an die Grenzfläche wandern und nach dem Abkühlen eine Verklebung herstellen. Das modifizierte Polymer kann auf die Oberfläche auch als Lösung oder Suspension aufgebracht und anschließend das Lösungsmittel verdampft werden. Jede Menge des modifizierten Olefinpolymers, welche die Haftung zwischen dem Metall und dem Polymermaterial erhöht, ist für die Herstellung der verbesserten erfindungsgemäßen Produkte zufriedenstellend. Die benötigte Menge variiert je nach Art des verwendeten Metalls bzw. Polymermaterials, sie ist jedoch leicht durch Versuche festzustellen. Die Menge wird nach und nach erhöht, bis man eine ausreichende Haftung erzielt. Zu den erfindungsgemäßen verstärkten Produkten gehören Verbundstoffe, Schicht-

stoffe und Gegenstände, bei denen das Metall als Folie oder kontinuierliche oder diskontinuierliche Faser vorliegt. Die Bezeichnung "Polymermaterial" schließt alles nicht veränderte Olefinpolymer ein, das zurückbleibt, nachdem ein Teil des Olefinpolymers durch Umsetzung mit substituiertem Maleinsäureamid modifiziert wurde.

Als Polymermaterial zur Herstellung verklebter Metallprodukte können außer dem Olefinpolymer auch alle anderen Polymere verwendet werden, die mit Hilfe des erfindungsgemäßen, modifizierten Olefinpolymer auf dem Metall zur Haftung gebracht werden. Beispielhafte geeignete Polymermaterialien sind Nylon, Polyester, Polyurethane, Styrolacrylnitrilharze, Polystyrol, ABS-Harze, sowie gehärteter oder ungehärteter Kautschuk.

Für die Herstellung erfindungsgemäßer Produkte sind alle Metalle geeignet, besonders jedoch diejenigen, die zwei- oder mehrwertig sind und eine Fließtemperatur über 200 °C haben.

Bevorzugte Metalle sind Eisen, Aluminium, Zink, Kupfer und ihre Legierungen, wie Messing und Stahl, wobei Aluminium besonders bevorzugt wird.

Im allgemeinen ist es notwendig, die Klebstoffschicht, die zu verklebende Oberfläche des Metallsubstrats und des anderen Substrats, falls ein solches vorhanden ist, über die Fließ- oder Erweichungstemperatur des Klebstoffes zu erwärmen.

Nachfolgend werden bevorzugte Ausführungsformen der Erfindung beschrieben.

Polypropylen wird durch die Wirkung eines substituierten Maleinsäureamids in Gegenwart eines Freie Radikale-Generators modifiziert. So werden beispielsweise 100 Gewichtsanteile Polypropylen (Profax 6723, Schmelzfluß 0,8, ASTM D-1238, Cond. L) und 5 Gewichtsanteile der angegebenen Reaktanten mit 80 U/min bei etwa 180 °C in einem Brabendermischer geknetet.

Nachdem ein homogenes Gemisch entstanden ist, werden 0,56 Gewichtsanteile eines Radikal-Generators, nämlich 2,5-Dimethyl-2,5-bis-(tert.-butylperoxy)-hexan, Lupersol-101, zugegeben und weitere 5 min gemischt. Das modifizierte Polypropylen wird herausgenommen, in einer Presse abgekühlt und entweder rein oder gemischt mit anderen Stoffen als warmschmelzender Klebstoff untersucht.

Es wird ein verstärktes Produkt hergestellt, indem man zwei 0,127 mm dicke Aluminiumfolien (12,7x12,7 cm) mit etwa 1 g modifiziertem Polypropylen oder einem Gemisch, das dieses enthält, verklebt. Ein Aluminium- "Sandwich" wird aus den zwei mit dem modifizierten Polypropylen verklebten Aluminiumfolien hergestellt, indem man bei 210 °C mit einem Druck preßt, der ausreicht, daß sich eine etwa 0,127 mm starke polymere Zwischenschicht bildet. Das Sandwich wird in Streifen mit 1" (2,54 cm) Breite geschnitten. Die Kraft, die benötigt wird, um die zwei Aluminiumstreifen bei 180 °C

auseinanderzuziehen, wird mit einem Zugtester gemessen; es wird eine Trenngeschwindigkeit von 1"/min (2,54 cm/min) angewandt. Die Haftwerte werden in pounds/linear inch aufgezeichnet. Es wird die Haftung von Aluminium an modifiziertem Polymer (modifiziertes PP) und an einem Gemisch mit einer thermoplastischen Elastomerzubereitung (TE/PP Gemisch) untersucht.

Die thermoplastische Elastomerzubereitung wird mittels dynamischer Vulkanisation hergestellt, wie sie in US-PS 4 130 535 beschrieben ist, jedoch wird ein Teil des Polypropylens durch modifiziertes Polypropylen ersetzt, ferner wird ein phenolischer Härter verwendet. Die thermoplastische Elastomerzubereitung enthält (auf das Gewicht bezogen) 50 Teile EPDM Kautschuk (Epsyn 70A), 37,5 Teile Polypropylen (Profax 6723) und 12,5 Teile modifiziertes Polypropylen. Zur Aushärtung des Kautschuks werden 5 Teile phenolisches Härterharz, d.h. SP-1045, und ein Teil Härtungsaktivator, in diesem Fall Zinkoxid, verwendet.

Die Ergebnisse sind in Tabelle I zusammengestellt. Material 1,2 und 3 dient zur Kontrolle, die Reaktanten sind Maleinsäure, Maleinsäureanhydrid bzw. 1,3-Phenylenbismaleinsäureimid. Material 4 bis 7 ist beispielhaft für Polypropylen, das mit Dimaleinsäureamidderivaten modifiziert wurde. Material 8 und 9 ist beispielhaft für mit N-Carboxyalkylmaleinsäure-

16
- 15 -

amid modifiziertes Polypropylen. Aus den Daten ist ersichtlich, daß Polypropylen, das mit einem Dimaleinsäureamidderivat modifiziert wurde, überlegene Haftung zeigt, wenn es in reiner Form verwendet wird, und daß Polypropylen, das mit einem N-Carboxyalkylmaleinsäureamid modifiziert wurde, überlegene Haftung in einem thermoplastischen Elastomergemisch aufweist. Der Test mit Material 4 wurde wiederholt, dabei werden an Stelle von 5 nur 2 Teile N,N'-(Hexamethylen)-dimaleinsäureamid zusammen mit dem Polypropylen verwendet. Die Haftungswerte sind 6,7 pli (pounds per linear inch) für modifiziertes PP, und 8,0 pli für das TE/PP Gemisch.

3108895

Tabelle I

Material Nr.	Reaktionsteilnehmer	Haftung an Aluminium, Pli Modifizierte PP TE/PP Gemisch
1	Maleinsäure	0,5
2	Maleinsäureanhydrid	2,5
3	1,3-Phenylénbismaleinsäureimid	0,24
4	N,N'-(Hexanmethylen)-dimaleinsäureimid	6,0
5	N,N'-(Dodecamethylen)-dimaleinsäureimid	6,0
6	N,N'-(1,4-Phenylén)-dimaleinsäureimid	8,0
7	N,N'-(1,3-Phenylén)-dimaleinsäureimid	7,0
8	N-(Carboxymethyl)-maleinsäureimid	1,0
9	N-(3-Carboxypropyl)-maleinsäureimid	0,25
		6,0
		7,8
		0,4
		8,5
		6,5
		2,0
		14,7
		12,0

18
- 27 -

Weitere modifizierte Polypropylenzubereitungen wurden hergestellt und wie in Tabelle I getestet, jedoch wurden als Polypropylen Profax 6523 (Schmelzindex 4) sowie 1,48 Teile Radikal-Generator verwendet. Die Ergebnisse sind in Tabelle II zusammengestellt.

Tabelle II

Material Nr.	Reaktionsteilnehmer	Haftung a. Aluminium, pli	
		TE/PP Gemisch	
1	N-(Carboxymethyl)-maleinsäureamid		23,5
2	N-(10-Carboxydecyl)-maleinsäureamid		13,5

Die Förderung der Haftung durch Mischen von ungehärtetem Kautschuk und erfundungsgemäßen modifizierten Polypropylen wird in Tabelle III dargestellt. Das modifizierte Polypropylen wird mit dem selben Verfahren wie oben aus Profax 6523 hergestellt. In Material 1 bis 5 werden pro 100 Teile Polypropylen 5 Teile N-(Carboxymethyl)-maleinsäureamid (CMMA) und 1,48 Teile organisches Peroxid (L-101) verwendet. In Material 6 bis 7 werden pro 100 Teile Polypropylen 10 Teile N-(Carboxymethyl)-maleinsäureamid und 0,87 Teile organisches Peroxid (L-101) verwendet. In Material 8 bis 11

Tabelle III

modifiziertes PP/EPDM Kautschuk (Gewichtsanteile) Aluminumaufhaftung, Pli

Material Nr.	Modifikator	modifiziertes PP/EPDM Kautschuk (Gewichtsanteile)	Aluminumaufhaftung, Pli
1	CMMA	100	- <0,5
2	CMMA	80	20 3,5
3	CMMA	70	30 10,0
4	CMMA	40	60 8,5
5	CMMA	20	80 6,5
6	CMMA	100	- 9,0
7	CMMA	70 [#]	30 32,5
8	HMDMA	100	- 6,0
9	HMDMA	80	20 10,0
10	HMDMA	70	30 14,5
11	HMDMA	60	40 12,5
12	PDMA	100	- 11,0
13	PDMA	70	30 26,0

* Gemisch aus 25 Teilen modifiziertem PP und 75 Teilen unmodifiziertem PP.

werden 5 Teile N,N -(Hexamethyl-en)-dimaleinsäureamid (HMIMA) und 0,56 Teile organisches Peroxid mit 100 Teilen Polypropylen zur Reaktion gebracht. In Material 12 bis 13 werden 5 Teile N,N -(1,4-Phenyl-en)-dimaleinsäureamid (PDMA) und 0,56 Teile organisches Peroxid pro 100 Teile Polypropylen verwendet. Das modifizierte Polypropylen wird mit ungehärtetem EPDM-Kautschuk (Ethylen-Propylen-Norbornen-Terpolymer, Epsyn 70.) in dem angegebenen Verhältnis (alle Teile auf das Gewicht bezogen) in einem Brabendermischer über der Schmelztemperatur des Polypropylens gemischt. Wie oben beschrieben stellt man ein Aluminiumsandwich, indem man die Klebstoffzusammensetzung zwischen zwei erhitzten Aluminiumfolien preßt. Die Haftung wird wie oben gemessen. Aus den Ergebnissen ist ersichtlich, daß die Aufnahme von ungehärtetem Kautschuk in das modifizierte Polypropylen die Haftung am Aluminium wesentlich erhöht. Die Daten ergeben ferner, daß man eine rechte Hafung erhält, wenn der Kautschuk mit 30 Gewichtsanteilen zu 70 Gewichtsanteilen Polypropylen, modifiziertes Polypropylen und ungehärteter Kautschuk zusammengenommen, vorhanden ist.

Ende der Beschreibung